

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-163011

(43)Date of publication of application : 06.06.2003

(51)Int.Cl.

H01M 4/88

H01M 8/10

(21)Application number : 2002-165826

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 06.06.2002

(72)Inventor : KAJI TAKASHI
MURATE MASASHI

(30)Priority

Priority number : 2001281382

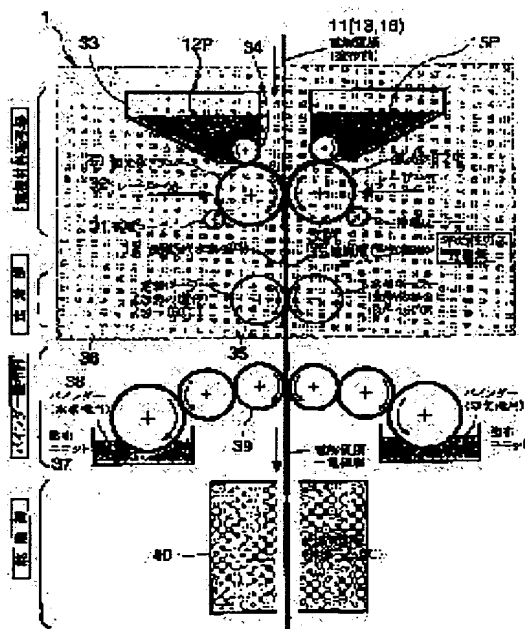
Priority date : 17.09.2001

Priority country : JP

(54) METHOD AND APPARATUS FOR MANUFACTURING FUEL CELL ELECTRODE**(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method and an apparatus for manufacturing a fuel cell electrode in which the electrode of an optional shape is made by a dry method.

SOLUTION: (1) The method and the apparatus for manufacturing the fuel cell electrode, wherein an electrode material powder 12P (15P) is retained on the drum 30 with a prescribed pattern by a copy system or a screen and squeegee system, the electrode material powder on the drum 30 is transferred to a film 11 comprising an electrode material or diffusion layer, and the transferred electrode material powder of the prescribed pattern is fixed on the film 1. (2) The method of manufacturing the fuel cell electrode, wherein the structure of the electrode is changed in the thickness direction by multiple coating of the electrode material powder 12P and 15P on the film 1 by static electricity. (3) The method and the apparatus for manufacturing the fuel cell electrode, wherein the electrode material powder 12P (15P) is applied directly on the film 11 without using a drum 30 as a medium.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

18.04.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-163011

(P2003-163011A)

(43) 公開日 平成15年6月6日(2003.6.6)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード*(参考)
H 0 1 M 4/88		H 0 1 M 4/88	K 5 H 0 1 8
8/10		8/10	5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数24 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2002-165826(P2002-165826)

(22) 出願日 平成14年6月6日(2002.6.6)

(31) 優先権主張番号 特願2001-281382(P2001-281382)

(32) 優先日 平成13年9月17日(2001.9.17)

(33) 優先権主張国 日本(J P)

(71) 出願人 000003207
トヨタ自動車株式会社
愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 加治 敬史
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(72) 発明者 村手 政志
愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100083091
弁理士 田渕 経雄

最終頁に続く

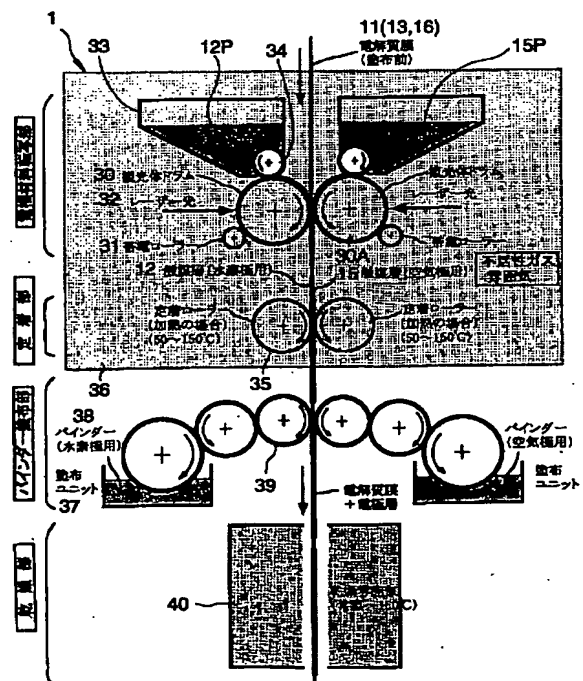
(54) 【発明の名称】 燃料電池電極の製造方法と製造装置

(57) 【要約】

【課題】 任意の形状の電極を乾式で作ることができる、燃料電池電極の製造方法と製造装置の提供。

【解決手段】 (1) 電極材料粉末12P(15P)を複写方式あるいはスクリーン+スキージ方式にてドラム30上に所定パターンをもって保持させ、ドラム30上の電極材料粉末を電解質または拡散層からなる膜11に転写し、転写された所定パターンの電極材料粉末を膜11に定着させる、燃料電池電極の製造方法および装置。

(2) 静電気による電極材料粉末12P、15Pの膜11上への塗布を複数回実行し、電極の構成を厚さ方向に変化させる燃料電池電極の製造方法。(3) 電極材料粉末12P(15P)をドラム30を介することなく直接、膜11に塗布する燃料電池電極の製造方法および装置。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 粉末状の電極材料を所定パターンでドラム上に塗布し、

前記ドラム上の電極材料を転写を1回以上行って目標の膜に転写し、

転写された電極材料を前記膜に定着させる、燃料電池電極の製造方法。

【請求項2】 表面の少なくとも一部がメッシュで形成されたスクリーンドラムに入れた粉末状の電極材料を、前記スクリーンドラムドラム内に配置されたスキージによって押さえつけることにより、前記スクリーンドラムのメッシュ部位を通過させて目標とする膜上へ所定パターンで直接塗布し、

塗布された電極材料を前記膜に定着させる、燃料電池電極の製造方法。

【請求項3】 前記転写された電極材料の前記膜への前記定着が、所定の圧力と所定の熱をもって行われる請求項1または請求項2記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項4】 前記電極材料の前記膜上への塗布を複数回実行し、電極の構成を厚さ方向に変化させる請求項1または請求項2記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項5】 前記電極材料のドラムへの塗布、前記ドラムから目標の膜への電極材料の転写、前記転写電極材料の膜への定着、が不活性ガス雰囲気内で行われる請求項1または請求項2記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項6】 前記転写された電極材料を前記膜に定着させた後に、

定着された電極材料上に液状バインダーを塗布し、塗布した液状バインダーを乾燥させる、請求項1または請求項2記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項7】 前記電極材料をドラム上に塗布する工程において、電極材料に予めバインダーをまぶしておく、あるいは電極材料に予めバインダーを混合しておく請求項1または請求項2記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項8】 前記電極材料が該電極材料粉末を収納する容器内で、振動または流動されている請求項1記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項9】 前記電極材料をドラム上に塗布する際に、

前記ドラムの表面を所定パターンで帯電させ、前記電極材料を前記ドラムに供給して前記ドラムの帯電部位に静電気にて吸着させる、請求項1記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項10】 前記ドラムを感光体ドラムから構成し、該ドラムに接触する帯電ローラを設け、前記ドラムの表面に投光する投光装置を設けておき、

前記ドラムの表面を所定パターンで帯電させる際に、前記帯電ローラを前記感光体ドラムに接触させて前記感光体ドラム表面全面を帯電させ、

前記感光体ドラム表面に前記投光装置から所定パターン

以外の部分に投光して所定パターン以外の部分を除電し、所定パターン部位を帯電させたままとする、請求項9記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項11】 前記ドラムとは別の、表面の少なくとも一部がメッシュで形成されたスクリーンドラムと、該スクリーンドラムドラム内に配置されたスキージとを設けておき、

前記電極材料をドラム上に塗布する際に、前記スクリーンドラムに入れた前記電極材料を、スキージによって押さえつけることにより、前記スクリーンドラムのメッシュ部位を通過させて前記ドラム上に塗布する請求項1記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項12】 前記スクリーンドラムに、ドラム全面にメッシュを形成しておき、

前記電極材料をドラム上に塗布する際に、前記ドラムの表面を所定パターンで帯電させ、前記スクリーンドラムに入れた前記電極材料を、前記スキージによって押さえつけることにより、前記ドラムの所定パターンの帯電部位に塗布する、請求項11記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項13】 前記スクリーンドラムに、所定パターン部位にメッシュを形成しておき、

前記電極材料をドラム上に塗布する際に、前記ドラムの表面全面を帯電させ、前記スクリーンドラムに入れた前記電極材料を、前記スキージによって押さえつけることにより、該スクリーンドラムの前記所定パターン部位に形成したメッシュを通して、前記ドラムに塗布する、請求項11記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項14】 前記スクリーンドラムに、所定パターン部位にメッシュを形成しておき、前記ドラムは非帯電としておき、

前記電極材料をドラム上に塗布する際に、前記スクリーンドラムに入れた前記電極材料を、前記スキージによって押さえつけかつ静電を印加することにより、該スクリーンドラムの前記所定パターン部位に形成したメッシュを通して、前記ドラムに塗布する、請求項11記載の燃料電池電極の製造方法。

【請求項15】 粉末状の電極材料を供給する電極材料供給装置と、

供給された電極材料が表面に所定パターンで塗布され該塗布された電極材料を目標の膜に転写するドラムと、転写された電極材料を前記目標の膜に定着させる定着装置と、を有する燃料電池電極の製造装置。

【請求項16】 粉末状の電極材料を供給し該電極材料を目標の膜に直接所定パターンで塗布する電極材料供給・塗布装置と、

塗布された電極材料を前記目標の膜に定着させる定着装置と、を有する燃料電池電極の製造装置。

【請求項17】 前記電極材料が、触媒物質を担持した

カーボン粉末と電解質粉末を混合したもの、または触媒物質を担持したカーボン粉末の表面に電解質をコーティングしたもの、を主成分とする、粉末状材料である請求項15または請求項16記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項18】 前記定着装置より前記膜の送り方向上流側に位置する装置が不活性ガス雰囲気中に配設されている請求項15または請求項16記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項19】 前記定着装置より前記膜の送り方向下流に設けられたバインダー供給装置およびその下流に設けられた乾燥部とをさらに有する請求項15または請求項16記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項20】 前記ドラム表面に電極材料粉末を供給する前記電極材料供給装置を構成する材料供給ローラーと、
前記ドラムを構成する感光体ドラムと、
前記ドラム位置より前記膜の送り方向下流に設けられた、前記定着装置を構成する定着ローラーと、
前記感光体ドラム表面を帯電させる帯電ローラーと、
前記感光体ドラムに投光し所定パターン以外の部分を除電する投光装置と、
前記感光体ドラムとの間に前記目標の膜を通し該膜を前記感光体ドラムに圧接するもう一つのドラムまたはローラーと、を有する請求項15記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項21】 前記ドラムとは別の、表面の少なくとも一部がメッシュで形成されたスクリーンドラムと、該スクリーンドラムドラム内に配置された、前記スクリーンドラム内の電極材料を押さえつけるスキージと、を有する請求項15記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項22】 前記スクリーンドラムのドラム全面にメッシュが形成されており、
前記ドラムが感光体ドラムから構成されており、
さらに、前記感光体ドラムを帯電する帯電ローラと、前記感光体ドラムを所定パターンで帯電させる投光装置とを、有している、請求項21記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項23】 前記スクリーンドラムは所定パターン部位にメッシュが形成されており、
さらに、前記ドラムを帯電する帯電ローラを有している、請求項21記載の燃料電池電極の製造装置。

【請求項24】 前記スクリーンドラムは所定パターン部位にメッシュが形成されており、
前記ドラムは非帯電ドラムからなり、前記スキージは前記スクリーンドラムに入れた前記電極材料に静電気を印加するスキージからなる、請求項21記載の燃料電池電極の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、固体高分子電解質型燃料電池の電極の製造方法と製造装置に関する。

【0002】

【従来の技術】固体高分子電解質型燃料電池は、イオン交換膜からなる電解質膜とこの電解質膜の一面に配置されたアノードおよび電解質膜の他面に配置されたカソードとからなる膜-電極アッセンブリ(MEA: Membrane-Electrode Assembly)と、アノード、カソードに燃料ガス(水素)および酸化ガス(酸素、通常は空気)を供給するための流体流路を形成するセパレータとを複数重ねてセル積層体とし、セル積層体のセル積層方向両端に、ターミナル(電極板)、インシュレータ、エンドプレートを設置し、セル積層体をセル積層方向に締め付け、セル積層体の外側でセル積層方向に延びる締結部材(たとえば、テンションプレート)にて固定したスタックからなる。アノード、カソードは触媒層を有する。触媒層とセパレータとの間には拡散層が設けられる。固体高分子電解質型燃料電池では、アノード側では、水素を水素イオンと電子にする反応が行われ、水素イオンは電解質膜中をカソード側に移動し、カソード側では酸素と水素イオンおよび電子(隣りのMEAのアノードで生成した電子がセパレータを通してくる、またはセル積層体の一端のセルのアノードで生成した電子が外部回路を通してくる)から水を生成する反応が行われる。

アノード側: $\text{H}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + 2\text{e}^-$

カソード側: $2\text{H}^+ + 2\text{e}^- + (1/2)\text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O}$

電解質膜には、通常、厚さが10~100 μm 程度のものが用いられる。触媒層は、それぞれ1~10 μm 程度の厚さで、電解質膜の両面、あるいは拡散層(カーボンペーパー、カーボクロスからなる)の片面に塗布されている。電解質膜に電極(アノード、カソード)材料を塗布する方法としては、従来、

- ① 印刷、ローラーコート、スプレー等により直接塗布する湿式塗布方法と、
- ② 予めポリテトラフルオロエチレンシート等に塗布した触媒層を熱転写(ホットプレス)で電解質膜に付着させシートを除去する方法がある。
- ③ また、特殊な塗布方法として、特開平3-295168号公報は、燃料電池の電極材料を電解質膜全面に静電気により付着させる方法を開示している。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかし、従来の直接塗布にはつぎの①、②の問題があった。

- ① 直接塗布方法は、湿式塗布で、カーボン粉末に貴金属を付着させた電極材料をイソプロピルアルコール・エタノール・キシレン等の溶剤に溶解または懸濁させて塗布するので、溶剤が電解質膜を変質させたり、膨潤・収縮させて塗布された電極層にクラックを発生させやすい。また、溶剤との混練条件によってはカーボン粉末の小塊が残ったりしてムラが発生し、塗布部位に均一塗布

することが難しい。また、任意の形状の電極や、所定形状中の各部位において濃度等構成を変えた電極を作ることできない。

② 予めシートに塗布しておいて電解質膜に転写する湿式塗布方法では、転写の工程が必要で、工程が増加し、かつ、複雑になり、コストアップを招く。また、任意の形状の電極や、所定形状中の各部位において濃度等構成を変えた電極を作ることできない。

③ また、特開平3-295168号公報の方法は、乾式塗布のため、従来の湿式塗布における溶剤の電解質膜の攻撃、膨潤・収縮による電極のクラック発生などの問題は除去できるが、任意の形状の電極や、所定形状中の各部位における濃度や、電極厚さ方向に組成を変えた電極を作ることできないという問題がある。本発明の目的は、乾式で電極を作ることができ、かつ、任意の形状の電極や、所定形状中の各部位において濃度等を変えた電極を作ることができる、燃料電池電極の製造方法と製造装置を提供することにある。本発明のもう一つの目的は、上記の目的に加え、さらに電極厚さ方向にも組成を変えた電極を作ることができる燃料電池電極の製造方法と製造装置を提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成する本発明はつぎの通りである。

(方法1) 粉末材料からなる電極材料を所定パターンでドラム上に塗布し、前記ドラム上の電極材料を転写を1回以上行って目標の膜に転写し、転写された電極材料を前記膜に定着させる、燃料電池電極の製造方法。ドラムへの電極材料の塗布には、静電複写方式と、スクリーン+スキージ方式がある。

(方法2) 表面の少なくとも一部がメッシュで形成されたスクリーンドラムに入れた粉末状の電極材料を、前記スクリーンドラム内に静止・配置されたスキージによって押さえつけることにより、前記スクリーンドラムのメッシュ部位を通過させて目標とする膜上へ直接所定パターンで塗布し、塗布された電極材料を前記膜に定着させる、燃料電池電極の製造方法。膜への電極材料の直接塗布は、スクリーン+スキージ方式である。

(方法3) 前記電極材料の前記膜上への塗布を複数回実行し、電極の構成を厚さ方向に変化させる(方法1)または(方法2)の燃料電池電極の製造方法。

(装置1) 粉末状の電極材料を供給する電極材料供給装置と、供給された電極材料が表面に所定パターンで塗布され該塗布された電極材料を目標の膜に転写するドラムと、転写された電極材料を前記目標の膜に定着させる定着装置と、を有する燃料電池電極の製造装置。ドラムへの電極材料の塗布には、静電複写方式と、スクリーン+スキージ方式がある。

(装置2) 粉末状の電極材料を供給し該電極材料を目標の膜に直接所定パターンで塗布する電極材料供給・塗

布装置と、塗布された電極材料を前記目標の膜に定着させる定着装置と、を有する燃料電池電極の製造装置。膜への電極材料の直接塗布は、スクリーン+スキージ方式である。

【0005】上記本発明の(方法1)～(方法3)の燃料電池電極の製造方法および(装置1)、(装置2)の燃料電池電極の製造装置では、ドラムまたは膜に所定パターンで電極材料を塗布するので(上記方法では、ドラムからいったん中間媒体膜に転写し中間媒体膜から膜に転写する場合を含む)、所定パターンをコントロールすることにより、任意形状の電極や、所定形状中の各部位において濃度等を変えた電極を作ることができる。また、粉末状の電極材料の、ドラムまたは膜への塗布であるため、乾式法であり、従来の湿式塗布における溶剤の電解質膜の攻撃、膨潤・収縮による電極のクラック発生などの問題が除去される。上記本発明の(方法3)の燃料電池電極の製造方法では、静電気による電極材料粉末の膜上への塗布を複数回実行し、電極構成を厚さ方向に変えるので、三次元的に膜構造を変えることができる。

【0006】

【発明の実施の形態】以下に、本発明の燃料電池電極の製造方法および燃料電池電極の製造装置を図1～図24を参照して、説明する。図中、図1、図2は燃料電池を示し、本発明の何れの実施例にも適用される。図3～図17は静電複写方式を示している。図3～図9はそれぞれ本発明の実施例1～7を示し、図10、図11は本発明の実施例8を示し、図12～図17は本発明の実施例9～14を示す。図18～図21はスクリーン+スキージ方式を示している。図18～図21は本発明の実施例15～実施例18を示している。図22、図23は本発明に適用される粉末状電極材料を示す。本発明の複数の実施例に共通するまたは類似する構成要素には、本発明の複数の実施例にわたって同じ符号を付してある。

【0007】まず、本発明の複数の実施例に共通する構成要素の構成、作用を、図1、図2、図3(静電複写方式)、図18(スクリーン+スキージ方式)、図21(スクリーン+スキージ方式で、かつ膜に直接塗布)、図22、図23を参照して、説明する。本発明の燃料電池電極の製造方法および製造装置によって製造された電極を有する燃料電池は、固体高分子電解質型燃料電池10である。本発明の燃料電池10は、たとえば燃料電池自動車に搭載される。ただし、自動車以外に用いられてもよい。

【0008】固体高分子電解質型燃料電池10は、図1、図2に示すように、イオン交換膜からなる電解質膜11とこの電解質膜11の一面に配置されたアノード14および電解質膜11の他面に配置されたカソード17とからなる膜-電極アッセンブリ(MEA: Membrane-Electrode Assembly)と、アノード、カソードに燃料ガス(水素)および酸化ガス(酸素、通常は空気)を供給

するための燃料ガス流路27、酸化ガス流路28を形成するセパレータ18とを複数重ねてセル19の積層体とし、セル積層体のセル積層方向両端に、ターミナル20（電極板）、インシュレータ21、エンドプレート22を配置し、セル積層体をセル積層方向に締め付け、セル積層体の外側でセル積層方向に延びる締結部材（テンションプレート24）、ボルト25にて固定したスタック23からなる。アノード14、カソード17は触媒層12、15を有する。触媒層12、15とセパレータ18との間には拡散層13、16が設けられる。セパレータ18には、セルを冷却するための冷媒（通常、冷却水）が流れる冷媒流路26も形成されている。

【0009】触媒層12、15からなる電極14、18は、電解質膜11の両面に塗布形成されるか、あるいは拡散層13、16の片面に塗布形成される。電極材料は、カーボン粉末に触媒貴金属（たとえば、Pt）を担持させたものと、電解質とを含む。電極材料は、導電性を有するが、非磁性である。そして、非磁性である点において、コピー機のトナーと異なる。

【0010】本発明の燃料電池電極の製造装置1は、図3に示すように、粉末状の電極材料12P（15P）を供給する電極材料供給装置33、34（41、42）と、供給された電極材料12P（15P）が表面に所定パターンで塗布され該塗布された電極材料12P（15P）を目標の膜11（13、16）に転写するドラム30と、転写された電極材料12P（15P）を目標の膜11（13、16）に定着させる定着装置35と、を有する。ドラム30上への電極材料12P（15P）の塗布は、静電塗布の場合と非静電塗布の場合を含む。あるいは、本発明の燃料電池電極の製造装置1は、図21に示すように、粉末状の電極材料12P（15P）を供給し電極材料12P（15P）を目標の膜11（13、16）に直接所定パターンで塗布する電極材料供給・塗布装置41、42と、塗布された電極材料12P（15P）を目標の膜11（13、16）に定着させる定着装置35と、を有するものから構成されてもよい。ここで、直接塗布とは、図3のようなドラム30を介して塗布するものでないということである。

【0011】ドラム30を介して塗布する場合の、燃料電池電極の製造装置1は、図3～図17に示すような静電複写方式の塗布装置を含むか、または図18～図21に示すようなスクリーン+スキージ方式の塗布装置を含む。

【0012】静電複写方式の場合は、燃料電池電極の製造装置1は、図3に示すように、電極材料粉末12P、15Pを収容している容器33から電極材料粉末12P（15P）をドラム30表面に供給する材料供給ローラー34と、ドラム30を構成する感光体ドラムと、ドラム30位置より膜11（13、16）の送り方向下流に設けられた、定着装置35を構成する定着ローラーと、

感光体ドラム30表面を帯電させる帯電ローラー31と、感光体ドラム30に投光し（光はたとえばレーザー光）所定パターン（この所定パターン部位に電極層が形成される）以外の部分を除電する投光装置32（レーザー光が投光された部位が除電される）と、感光体ドラム30との間に目標の膜11（13、16）を通し膜11（13、16）を感光体ドラム30に圧接するもう一つのドラム30Bまたはローラーと、を有する。容器33および材料供給ローラー34は、電極材料供給装置を構成している。

【0013】スクリーン+スキージ方式の場合は、燃料電池電極の製造装置1は、図18に示すように、ドラム30とは別の、表面の少なくとも一部（全部である場合と一部である場合を含む）がメッシュで形成されたスクリーンドラム41と、スクリーンドラム41内に静止・配置された、スクリーンドラム41内の電極材料12P（15P）を押さえつけるスキージ42と、を有する。スクリーンドラム41のメッシュの目は、電極材料粉末12P（15P）の粒子の大きさに合わせてあり、粒子がスキージ42で押された時にメッシュを通して粒子を通過させる。

【0014】静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、目標の膜は燃料電池の電解質膜11または拡散層13、16のシートである。また、静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、電極材料12P（15P）は、触媒物質（たとえば、Pt）を担持したカーボン粉末45と電解質粉末46を混合したもの（図23）、または触媒物質を担持したカーボン粉末45の表面に電解質46をコーティングしたもの（図24）、を主成分とする、粉末状材料である。また、スクリーン+スキージ方式の場合は、電極材料12P（15P）はゾル状（鉛状）であってもよい。また、静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、転写された電極材料12P（15P）を膜11（13、16）に定着する装置は、互いに圧接された加熱された一対のドラム35からなる。一対のドラム35の間に膜11（13、16）が通過されて、電極材料12P（15P）が膜11（13、16）に定着される。

【0015】静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、定着装置35および定着装置35より膜の送り方向上流側に位置する装置は、不活性ガス雰囲気36中に配設されている。静電複写方式の場合は、感光体ドラム30、帯電ローラー31、材料供給ローラー34、感光体ドラム30に圧接するもう一つのドラム30Aまたはローラー30Bを備えた電極材料転写部と、定着ローラー35を備えた定着部とは、不活性ガス雰囲気36中に配設されている。スクリーン+スキージ方式の場合は、スクリーンドラム41およびスキージ42を備えた電極材料塗布部と、ドラム30からなる転写部と、定着ローラー35を備えた定着部とは、不活性ガ

ス雰囲気36中に配設されている。不活性ガスは、たとえば窒素である。不活性ガス雰囲気36中に配設するのは、加熱雰囲気（たとえば、定着ローラー35を加熱する場合は50～150℃に加熱する）で塗布が行われるので、カーボン粉末の発火のおそれを皆無にして、万全の安全性を期するためである。

【0016】静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、本発明の燃料電池電極の製造装置1は、電極材料粉末12P、15Pがバインダーをまぶせられたり、バインダー粒子を混合されていてもよい。あるいは、電極材料粉末12P、15Pがバインダーをまぶせられたり、バインダー粒子を混合されていない場合には、定着ローラー35より膜11の送り方向下流に設けられたバインダー供給装置37およびその下流に設けられた乾燥部40とをさらに有していてもよい。バインダー供給装置37はバインダー塗布部を構成する。電極材料粉末12P、15Pがバインダーをまぶせられたりバインダー粒子を混合されている場合は、バインダー供給装置37および乾燥部40を設けなくてもよい。乾燥部40は常温～150℃までの温度を有し、バインダーを乾燥させる。

【0017】本発明の燃料電池電極の製造方法は、図3に示すように、粉末状の電極材料12P（15P）を所定パターンでドラム30上に塗布し、ドラム30上の電極材料12P（15P）を転写を1回以上行って（「1回以上行う」には、ドラム30からいったん中間媒体膜に転写し該中間媒体膜から目標の膜に転写する場合を含む。）目標の膜11（13、16）に転写し、転写された電極材料12P（15P）を膜11（13、16）に定着させる、工程を有する。ドラム30上への電極材料12P（15P）の塗布は、静電塗布の場合と非静電塗布の場合を含む。あるいは、本発明の燃料電池電極の製造方法は、図21に示すように、表面の少なくとも一部がメッシュで形成されたスクリーンドラム41に入れた粉末状の電極材料12P（15P）を、前記スクリーンドラム内に静止・配置されたスキージ42によって押さえつけることにより、スクリーンドラム41のメッシュ部位を通過させて目標の膜11（13、16）上へ所定パターンで直接塗布し、塗布された電極材料12P（15P）を膜11（13、16）に定着させる、工程を有する。ここで、直接塗布とは、図3のようなドラム30を介して塗布するものでないということである。

【0018】ドラム30を介して塗布する場合の、燃料電池電極の製造方法は、図3～図17に示すような静電複写方式の塗布方法を含むか、または図18～図21に示すようなスクリーン+スキージ方式の塗布方法を含む。

【0019】静電複写方式の場合、燃料電池電極の製造方法は、図3に示すように、電極材料12P（15P）をドラム30上に塗布する際に、ドラム30の表面

を所定パターンで帯電させ、電極材料12P（15P）をドラム30に供給してドラムの帯電部位に静電気で吸着させる工程を含む。さらに詳しくは、静電複写方式の場合、燃料電池電極の製造方法は、図3に示すように、ドラム30を感光体ドラムから構成し、感光体ドラム30に接触する帯電ローラー31を設け、感光体ドラム30の表面に投光する投光装置32を設けておき、ドラム30の表面を所定パターンで帯電させる際に、帯電ローラー31を感光体ドラム30に接触させて感光体ドラム表面全面を帯電させ、感光体ドラム表面に投光装置32から所定パターン以外の部分に投光して所定パターン以外の部分を除電し、所定パターン部位を帯電させたままとする、工程を含む。そして、所定パターン部位に電極材料粉末12P、15Pを静電気で保持させる。コピー機の場合は磁力で粉末をドラム上に保持させるが、本発明では静電気で感光体ドラム30上に電極材料粉末12P、15Pを保持させる。

【0020】スクリーン+スキージ方式の場合は、燃料電池電極の製造方法は、ドラム30とは別の、表面の少なくとも一部がメッシュで形成されたスクリーンドラムと41と、スクリーンドラムドラム41内に静止・配置されたスキージ42とを設けておき、電極材料12P（15P）をドラム30上に塗布する際に、スクリーンドラム41に入れた電極材料12P（15P）を、スキージ42によって押さえつけることにより、スクリーンドラム41のメッシュ部位を通過させてドラム30上に塗布する工程を含む。スクリーンドラム41のメッシュの目は、電極材料粉末12P（15P）の粒子の大きさに合わせてあり、粒子がスキージ42で押された時にメッシュを通して粒子を通過させる。塗布は、静電塗布および非静電塗布を含む。

【0021】装置で説明したと同様、方法においても、静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、目標の膜は燃料電池の電解質膜11または拡散層13、16のシートである。

【0022】また、静電複写方式の場合も、スクリーン+スキージ方式の場合も、電極材料12P（15P）は、触媒物質（たとえば、Pt）を担持したカーボン粉末45と電解質粉末46を混合したもの（図23）、または触媒物質を担持したカーボン粉末45の表面に電解質46をコーティングしたもの（図24）、を主成分とする、粉末状材料である。静電複写方式の場合、電極材料粉末12P（15P）は分級されて粉末サイズを揃えられており、電極材料粉末を収納する容器33内で、振動または流動されて固まらないようにされている。振動の場合は、超音波または高周波電流をかけられて振動され、流動の場合は下から気体を送りこんで流動される。スクリーン+スキージ方式の場合は、電極材料12P（15P）はゾル状（鉛状）であってもよい。

【0023】また、静電複写方式の場合も、スクリーン

＋スキージ方式の場合も、互いに圧接された加熱された対をなすドラム35の間に膜11(13、16)を通過させて、転写された電極材料12P(15P)が膜11(13、16)に定着される。圧力は4MPa以上で、コピー機の場合の圧力の約10倍であり、温度は50～150℃が望ましい。150℃以上では膜11が温度でダメージを受け、50℃以下では加熱の効果が少ないからである。80～120℃程度が好ましい。

【0024】静電複写方式の場合は、電極材料12P(15P)のドラム30への静電塗布、膜11(13、16)への転写、定着は不活性ガス雰囲気36中で行われる。スクリーン＋スキージ方式の場合は、電極材料12P(15P)のスクリーンドラム41およびスキージ42によるドラム30または膜11(13、16)への塗布、および定着ローラー35による定着は、不活性ガス雰囲気36中で行われる。不活性ガスは、たとえば窒素である。不活性ガス雰囲気36中に配設するのは、加熱雰囲気(たとえば、定着ローラー35を加熱する場合は50～150℃に加熱する)で塗布が行われるので、カーボン粉末の発火のおそれを皆無にして、万全の安全性を期するためである。

【0025】また、静電複写方式の場合も、スクリーン＋スキージ方式の場合も、転写された所定パターンの電極材料粉末12P(15P)を膜11(13、16)に定着ローラー35にて定着させる工程の後に、定着された電極材料粉末上に液状バインダー38を塗布する工程と、塗布した液状バインダーを乾燥させる工程を、設けてもよい。液状バインダー38はローラー39塗布してもよいし、スプレー塗布してもよい。これらの工程を設けるのは、電極材料粉末12P(15P)の膜11(13、16)への定着をより完全にするためである。ただし、電極材料粉末12P(15P)を感光体ドラム30上に所定パターンをもって塗布する工程において、電極材料粉末12P(15P)に予めバインダーをまぶしておき、あるいは電極材料粉末12P(15P)に予め粉体バインダーを混合しておく場合は、定着工程で電極材料粉末12P(15P)が膜11(13、16)に十分に定着するので、上記の液状バインダー38塗布工程とその乾燥工程は設けなくてもよい。

【0026】また、静電複写方式の場合も、スクリーン＋スキージ方式の場合も、電極材料粉末12P(15P)の膜11、(13、16)上への塗布を複数回実行し、電極構成を厚き方向に変えてもよい。

【0027】つぎに、上記の本発明の複数の実施例に共通な構成の作用を説明する。本発明の燃料電池電極の製造方法および製造装置では、ドラム30または膜11、(13、16)に所定パターンで電極材料を塗布するので、所定パターンをコントロールすることにより、任意形状の電極や、所定形状中の各部位において濃度等を変えた電極を作ることができる。

【0028】さらに詳しくは、静電複写方式の場合は、感光体ドラム30表面全面を帯電させ、レーザ光投光の際、電極材料を塗布しない部分だけにパターン露光してその部分を除電し、静電気を帯電している部分のみに電極材料粉末12P、15Pを付着させ、それを電解質11または拡散層13、16からなる膜に転写することにより、露光のパターンと該露光パターンの各部位での強弱のコントロールで任意の形状の電極12、15や、所定形状中の各部位において濃度等を変えた電極12、15を作ることができる。すなわち、パターン露光のため、任意の形状の電極14、17が得られ、かつその形状の中においても、電極濃度(コピーで言えば濃淡)を変えることができる。たとえば、セパレータの溝(ガス流路)に対応する部分は電極材料粉末を高濃度で形成し、セパレータのリブ(ガス流路でない部分)で拡散層を介して圧接される部分は電極材料粉末を低濃度で形成することができ、高価な触媒貴金属の塗布量を低減できる。また、ガスは下流にいく程低濃度になるので、それに合わせて電極材料粉末の塗布濃度を変えることができ、流路に沿って均一な発電とすることにも寄与できる。従来はこのようなセル面内でパターンや濃度を変えることはできないが、本発明ではコピーと同じように変えることが容易にできる。スクリーン＋スキージ方式の場合は、スクリーンドラム41のメッシュ部のパターンを選択することにより、上記と同様の作用を得ることができる。

【0029】また、粉末状の電極材料12P(15P)を用いた乾式塗布法であるため、従来の湿式塗布における溶剤の電解質膜の攻撃、膨潤・収縮による電極のクラック発生などの問題が除去される。

【0030】また、電極材料粉末12P、15Pを電極材料粉末収納容器33内で、振動または流動(気体を下から供給して粉末を浮動・流動させる)させる場合は、カーボン粉末12P、15Pが固まって小塊を形成することがなく、良質のトナーを供給でき、膜11(、13、16)上の塗布パターンが良質かつ鮮明なものとなる。

【0031】また、定着ローラー35による電極材料粉末12P(15P)の膜11(、13、16)への定着が所定の圧力と所定の熱をもって行われる。圧力はコピー機の場合の圧力よりはるかに大(数倍以上)であり、確実に定着が行われる。温度は、150℃以下(約50℃～150℃)で行われるので、膜11(、13、16)にダメージを与えない。

【0032】また、電極材料粉末12P(15P)のドラム30への塗布、ドラム30から膜11(、13、16)への転写、転写電極材料粉末12P(15P)の膜11(、13、16)への定着、の各工程が不活性ガス雰囲気36内で行われるので、カーボン粉体を含む電極材料が加熱雰囲気にあるにもかかわらず、燃焼せず、安全

である。

【0033】電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)がバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていない場合、電極材料粉末の膜への定着工程の後に、定着された電極材料粉末上に液状バインダー38を塗布し、塗布した液状バインダー38を乾燥させる工程を設けることにより、こすっても電極形状がくずれたり、剥がれたりすることを防止できる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)に予めバインダーをまぶしておき、あるいは電極材料粉末12P(15P)に予め粉体バインダーを混合しておく場合は、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程を設ける必要がなく、工程が簡素化される。

【0034】また、静電複写方式の場合も、スクリーン＋スキージ方式の場合も、電極材料粉末12P(15P)の膜11、(13、16)上への塗布を複数回実行することにより、電極構成を厚さ方向に変えることができ、三次元的に電極構造を変えることができる。

【0035】つぎに、本発明の各実施例に特有な構成、作用を説明する。

実施例1(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例1では、図3に示すように、膜11の両面に電極材料粉末12P、15Pが塗布され、触媒層12、15が形成される。膜11(または13、16)は、上から下へと送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P、15Pはバインダーをまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例1の作用については、バインダー37は湿式塗布であり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0036】実施例2(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例2では、図4に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され、触媒層12(15)が形成される。膜11(または13、16)は、水平に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーをまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例2の作用については、バインダー37はロール39による湿式塗布であり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0037】実施例3(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例3では、図5に示すように、膜11(ま

たは13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され触媒層12(15)が形成される。膜11(または13、16)は、水平に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーをまぶされているか、あるいはバインダー粒子が混合されているので、定着工程の後にバインダー塗布工程は設けられていない。バインダー乾燥工程が設けられているが、この工程は除去してもよい。本発明の実施例3の作用については、バインダー37塗布工程がないので、工程の簡素化がはかられる。

【0038】実施例4(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例4では、図6に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され触媒層12(15)が形成される。膜11(または13、16)は、水平に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例2の作用については、バインダー37塗布はスプレーノズル39Aからのスプレーであり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0039】実施例5(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例5では、図7に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され触媒層12(15)が形成される。膜11(または13、16)は、上から下に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーをまぶされているか、あるいはバインダー粒子が混合されているので、定着工程の後にバインダー塗布工程は設けられていない。バインダー乾燥工程が設けられているが、この工程は除去してもよい。本発明の実施例5の作用については、バインダー37塗布工程がないので、工程の簡素化がはかられる。

【0040】実施例6(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例6では、図8に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され触媒層12(15)が形成される。膜11(または13、16)は、上から下に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例6の作用については、バインダー37はロール39による湿式塗布であり、全面塗布でよく、触

媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0041】実施例7（ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式）

本発明の実施例7では、図9に示すように、膜11（または13、16）の片面に電極材料粉末12P（15P）が塗布され触媒層12（15）が形成される。膜11（または13、16）は、下から上に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P（15P）はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例7の作用については、バインダー37塗布はスプレーノズル39Aからのスプレーであり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0042】実施例8（ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式）

本発明の実施例8では、図10に示すように、膜11の両面に電極材料粉末12P、15Pが塗布され触媒層12、15が形成される。膜11は、上から下に送られる。電極材料転写工程とその定着工程が膜送り方向に複数回実行される。図示例は2回実行される場合を示し、第1回目の電極材料転写部、その定着部、第2回目の電極材料転写部、その定着部、膜送り方向に順に設けられて、実行される。各電極材料転写部における塗布パターンは、形状、濃度を、互いに変えてもよい。そうすることによって、塗布パターンの形状、濃度、厚さ、厚さ方向組成、等を三次元に変化させることができる。また、電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P、15Pはバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、最終の定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。バインダー塗布はたとえばロールコートによる。本発明の実施例8の作用については、複数回塗布を実行し、各回塗布でパターン、濃度、組成、厚さの少なくとも一つを変化させたので、触媒層構成を厚さ方向を含み、三次元に変化させることができる。

【0043】図11は、触媒層12、15の種々の構成例を示す。図11の（イ）は、触媒層を厚み方向に複数層に形成し、各層で順に組成を変えた場合を示す。これによって、触媒層の組成が厚み方向に変わる。図11の（ロ）は、触媒層を厚み方向に複数層に形成し、各層で順に形状を変えた場合を示す。これによって、触媒層の全厚がパターン内で変わる。図11の（ハ）は、触媒層をセル面内を一方に複数に区画し、各区画を各電極材料転写部で塗布し、かつ各区画で塗布濃度、塗布厚みを順に異ならせた場合である。これによって、セル面内方向に触媒層の構成が順に変わる。図11の（ニ）は、触

媒層をセル面内をもう一つの方向（図11のハと直交方向）に複数に区画し、各区画を各電極材料転写部で塗布し、かつ各区画で塗布濃度、塗布厚みを順に異ならせた場合である。これによって、セル面内方向（図11のハと直交方向）に触媒層の構成が順に変わる。図11の

（ホ）は、触媒層をセル面内を一方に複数に区画し、各区画を各電極材料転写部で塗布し、かつ各区画で塗布濃度、塗布厚みを一端から中央にかけて順に異ならせる（濃くする）とともに中央から他端にかけて順に異ならせた（薄くした）場合である。これによって、セル面内方向に触媒層の構成が端部と中央部とで変わる。図11の（ヘ）は、触媒層をセル面内を斜め方向に複数に区画し、各区画を各電極材料転写部で塗布し、かつ各区画で塗布濃度、塗布厚みを順に異ならせた場合である。これによって、セル面内方向に触媒層の構成が斜め方向に順に変わる。

【0044】実施例9（ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式）

本発明の実施例9では、図12に示すように、膜11（または13、16）の片面に電極材料粉末12P（15P）が塗布され、触媒層12（15）が形成される。触媒層12（15）は、膜送り方向に複数設けた電極材料転写部で、複数回、形成される。膜11（または13、16）は、水平に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P（15P）はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例9の作用については、バインダー37はロール39による湿式塗布であり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0045】実施例10（ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式）

本発明の実施例10では、図13に示すように、膜11（または13、16）の片面に電極材料粉末12P（15P）が塗布され、触媒層12（15）が形成される。触媒層12（15）は、膜送り方向に複数設けた電極材料転写部で、複数回、形成される。膜11（または13、16）は、水平に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P（15P）はバインダーをまぶされているか、あるいはバインダー粒子が混合されているので、定着工程の後にバインダー塗布工程は設けられていない。バインダー乾燥工程が設けられているが、この工程は除去してもよい。本発明の実施例10の作用については、バインダー37塗布工程がないので、工程の簡素化がはかれる。

【0046】実施例11（ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式）

本発明の実施例11では、図14に示すように、膜11

(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され、触媒層12(15)が形成される。触媒層12(15)は、膜送り方向に複数設けた電極材料転写部で、複数回、形成される。膜11(または13、16)は、水平に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例11の作用については、バインダー37塗布はスプレーノズル39Aからのスプレーであり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0047】実施例12(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例12では、図15に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され、触媒層12(15)が形成される。触媒層12(15)は、膜送り方向に複数設けた電極材料転写部で、複数回、形成される。膜11(または13、16)は、上から下に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーをまぶされているか、あるいはバインダー粒子が混合されているので、定着工程の後にバインダー塗布工程は設けられていない。バインダー乾燥工程が設けられているが、この工程は除去してもよい。本発明の実施例12の作用については、バインダー37塗布工程がないので、工程の簡素化ははかられる。

【0048】実施例13(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例13では、図16に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され、触媒層12(15)が形成される。触媒層12(15)は、膜送り方向に複数設けた電極材料転写部で、複数回、形成される。膜11(または13、16)は、上から下に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例13の作用については、バインダー37はロール39による湿式塗布であり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0049】実施例14(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布は複写方式)

本発明の実施例14では、図17に示すように、膜11(または13、16)の片面に電極材料粉末12P(15P)が塗布され、触媒層12(15)が形成される。触媒層12(15)は、膜送り方向に複数設けた電極材

料転写部で、複数回、形成される。膜11(または13、16)は、下から上に送られる。電極材料粉末収納容器33内の電極材料粉末12P(15P)はバインダーが仮定着のために最低限しかまぶされておらず、あるいはバインダー粒子が仮定着のために最低限しか混合されていないので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程が設けられている。本発明の実施例14の作用については、バインダー37塗布はスプレーノズル39Aからのスプレーであり、全面塗布でよく、触媒も含まないので、コスト上、問題ない。

【0050】実施例15(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布はスクリーン+スキージ方式)

本発明の実施例15では、図18に示すように、電極材料粉末12P(15P)の粒子に合わせたメッシュで形成された全面メッシュでできたスクリーンドラム41と、電極材料粉末12P(15P)を均し、押さえつけることによりドラム30に塗布するためのスキージ42が設けられている。電極材料粉末12P(15P)はスクリーンドラム41のメッシュを通過してドラム30上に塗布される。静電はあってもなくてもよい。静電がある場合は、ドラム30は感光体ドラムから構成され、帯電ローラ31で全面が帯電され、ドラム30にレーザー光等を投光し投光した部分を除電し、投光した部分以外の部分を帯電したままとする。そして、電極材料粉末12P(15P)はスクリーンドラム41の帯電した部分に所定パターンで塗布される。ドラム30上に塗布された電極材料12P(15P)はドラム30から膜11(または13、16)に転写され、触媒層12(15)が形成される。定着は膜11(または13、16)を対をなす加熱ローラ35間に通すことにより行われる。定着部とそれより上流の塗布部は不活性雰囲気内に保たれる。膜11(または13、16)は、図示例では下から上に送られているが、送り方向は上下方向でもよい。本発明の実施例15の作用については、ドラムへの塗布はスクリーン+スキージ方式であり、ドラム30に塗布された電極材料はメッシュを通過した粒子であるため、サイズが揃っており、カーボン粉末の小塊が塗布されるような不具合は生じない。また、スクリーンドラム41は回転しているので、スクリーンドラム41内の電極材料12P(15P)の流動性は良好である。

【0051】実施例16(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布はスクリーン+スキージ方式)

本発明の実施例16では、図19に示すように、電極材料粉末12P(15P)の粒子に合わせたメッシュで形成された、塗布する電極形状に合ったメッシュパターンが設定されているスクリーンドラム41と、電極材料粉末12P(15P)を均し、押さえつけることによりドラム30に塗布するためのスキージ42が設けられている。スクリーンドラム41内の電極材料粉末12P(15P)はスクリーンドラム41の電極形状のパターンで

形成されたメッシュを通してドラム30上に塗布される。静電はあってもなくてもよい。静電がある場合は、ドラム30は帯電ドラムから構成され、帯電ローラ31で全面が帯電される。そして、電極材料はドラム30の電極形状に合ったパターンをもつメッシュ部から該メッシュを通して帯電ドラム上30の所定パターンで塗布される。ドラム30上に塗布された電極材料12P(15P)はドラム30から膜11(または13、16)に転写され、触媒層12(15)が形成される。定着は膜11(または13、16)を対をなす加熱ローラ35間に通すことにより行われる。定着部とそれより上流の塗布部は不活性雰囲気内に保たれる。本発明の実施例16の作用については、ドラムへの塗布はスクリーン+スキージ方式であり、ドラム30に塗布された電極材料はメッシュを通過した粒子であるため、サイズが揃っており、カーボン粉末の小塊が塗布されるような不具合は生じない。また、スクリーンドラム41は回転しているので、スクリーンドラム41内での電極材料12P(15P)の流動性は良好である。

【0052】実施例17(ドラムに塗布後膜に転写、ドラムへの塗布はスクリーン+スキージ方式)

本発明の実施例17では、図20に示すように、電極材料粉末12P(15P)の粒子に合わせたメッシュで形成された、塗布する電極形状に合ったメッシュパターンが設定されているスクリーンドラム41と、電極材料粉末12P(15P)を均し押さえつけかつ電極材料粉末12P(15P)に静電を印加してドラム30に塗布するためのスキージ42が設けられている。スクリーンドラム41内の電極材料粉末12P(15P)はスクリーンドラム41の電極形状のパターンで形成されたメッシュを通してかつスキージ42によって静電を印加されてドラム30上に所定パターンで塗布される。ドラム30上に塗布された電極材料12P(15P)はドラム30から膜11(または13、16)に転写され、触媒層12(15)が形成される。定着は膜11(または13、16)を対をなす加熱ローラ35間に通すことにより行われる。定着部とそれより上流の塗布部は不活性雰囲気内に保たれる。本発明の実施例17の作用については、ドラムへの塗布は、静電を印加された電極材料粉末12P(15P)の、スクリーン+スキージ方式であり、ドラム30に塗布された電極材料はメッシュを通過した粒子であるため、サイズが揃っており、カーボン粉末の小塊が塗布されるような不具合は生じない。また、スクリーンドラム41は回転しているので、スクリーンドラム41内での電極材料12P(15P)の流動性は良好である。

【0053】実施例18(膜に直接塗布、膜への塗布はスクリーン+スキージ方式)

本発明の実施例18では、図21に示すように、電極材料粉末12P(15P)の粒子に合わせたメッシュで形

成された、塗布する電極形状に合ったメッシュパターンが設定されているスクリーンドラム41と、電極材料粉末12P(15P)を均し押さえつけてドラム30に塗布するためのスキージ42が設けられている。膜11

(または13、16)は、スクリーンドラム41より上流側で帯電ドラム31により全面に静電が付与されている。スクリーンドラム41内の電極材料粉末12P(15P)はスクリーンドラム41の電極形状のパターンで形成されたメッシュを通して膜(または13、16)に直接、所定パターンで塗布される。定着は膜11(または13、16)を対をなす加熱ローラ35間に通すことにより行われる。定着部とそれより上流の塗布部は不活性雰囲気内に保たれる。3本発明の実施例18の作用については、ドラムへの塗布はスクリーン+スキージ方式であり、膜11(または13、16)に塗布された電極材料はメッシュを通過した粒子であるため、サイズが揃っており、カーボン粉末の小塊が塗布されるような不具合は生じない。また、スクリーンドラム41は回転しているので、スクリーンドラム41内での電極材料12P(15P)の流動性は良好である。

【0054】実施例19(裏当てフィルムによる膜の補強)

本発明の実施例19では、図22に示すように、膜11(または13、16)を裏当てフィルム43によって補強し、電極材料12P(15P)の塗布後裏当てフィルム43を膜11(または13、16)からはがす。その他は本発明の他の実施例と同じである。図22は本発明の他の実施例として、たとえば図18の実施例(ただし、図18の実施例に限定されるものではない)を用いた場合を示している。電極材料塗布部の上流で、膜11(または13、16)の電極材料を塗布すべき面と反対面に裏当てフィルム43を沿わせて膜11(または13、16)を補強し、補強した状態で膜11(または13、16)の片面(裏当てフィルムが当てられた面と反対側の面)に電極材料を塗布し、対をなす加熱ドラム35間に通して定着させる。ついで、加熱ドラム35より下流に位置する一対のドラム44の一つのドラムに沿わせて裏当てフィルム43をはがすとともに、反対側の面(電極材料が塗布された面)に、一対のドラム44のもう一つのドラムに沿わせて新たにフィルム43を供給し、膜11(または13、16)に沿わせて膜11(または13、16)を補強し、補強した状態でさらに下流の電極材料塗布部に送って、該下流の電極材料塗布部で膜11(または13、16)の他面(電極材料が塗布されていない側の面)に電極材料を塗布する。ついで、対をなす加熱ドラム間に通して定着させ、それより下流のドラム位置で、フィルム43をはがす。裏当てフィルム43は、PTFEやポリエチレン等、電気絶縁性をもったフィルムを使用することが、電荷を確実に保持する点から、望ましい。裏当てフィルム43を膜11(または

13、16)に沿わせる作用は、膜11(または13、16)を補強できること、静電的な塗着効率をあげることである。

【0055】

【発明の効果】請求項1～14の燃料電池電極の製造方法および請求項15～24の燃料電池電極の製造装置によれば、ドラムまたは膜に所定パターンで電極材料を塗布するので(上記方法では、ドラムからいったん中間媒体膜に転写し中間媒体膜から膜に転写する場合を含む)、所定パターンを適宜に選定することにより、任意形状の電極や、所定形状中の各部位において濃度等を変えた電極を作ることができる。また、粉末状の電極材料の、ドラムまたは膜への塗布であるため、乾式法であり、従来の湿式塗布における溶剤の電解質膜の攻撃、膨潤・収縮による電極のクラック発生などの問題が除去される。請求項1の燃料電池電極の製造方法および請求項15、17の燃料電池電極の製造装置によれば、電極材料を所定パターンでドラム上に塗布するので、任意形状の電極を作ることができる。また、乾式法の塗布のため、従来の湿式塗布における溶剤の電解質膜の攻撃、膨潤・収縮による電極のクラック発生などの問題を除去できる。請求項2の燃料電池電極の製造方法および請求項16、17の燃料電池電極の製造装置によれば、電極材料を目標とする膜上へ所定パターンで直接、スクリーン+スキージを用いて塗布するので、任意形状の電極を作ることができる。また、乾式法または最小限の溶剤分(ゲル(給状))を塗布するため、従来の湿式塗布における溶剤の電解質膜の攻撃、膨潤・収縮による電極のクラック発生などの問題を除去できる。請求項3の燃料電池電極の製造方法によれば、定着が所定の圧力と所定の熱をもって行われるが、圧力はコピー機の場合の圧力よりは大きい(数倍以上)のため定着が十分に行われ、温度は150℃以下で行われるので、膜にダメージを与えない。請求項4の燃料電池電極の製造方法によれば、静電気による電極材料粉末の膜上への塗布を複数回実行し、電極構成を厚さ方向に変えるので、三次元的に膜構造を変えることができる。請求項5の燃料電池電極の製造方法および請求項18の燃料電池電極の製造装置によれば、電極材料のドラムへの塗布、ドラムから膜への転写、転写電極材料粉末の膜への定着、の各工程が不活性ガス雰囲気内で行われるので、カーボン粉体を含む電極材料が加熱雰囲気にあるにもかかわらず、安全である。請求項6の燃料電池電極の製造方法および請求項19の燃料電池電極の製造装置によれば、電極材料粉末の膜への定着工程の後に、定着された電極材料粉末上に液状バインダーを塗布し、塗布した液状バインダーを乾燥させる工程を設けたので、こすっても電極形状がくずれたり、剥がれたりすることを防止できる。請求項7の燃料電池電極の製造方法によれば、電極材料粉末に予めバインダーをまぶしておき、あるいは電極材料粉末に予め粉体バ

インダーを混合しておくので、定着工程の後にバインダー塗布工程とバインダー乾燥工程を設ける必要がなく、工程が簡素化される。請求項8の燃料電池電極の製造方法によれば、電極材料粉末は電極材料粉末収納容器内で、振動または流動(気体を下から供給して粉末を浮動・流動させる)させるので、カーボン粉末が固まることがなく、良質のトナーを供給でき、膜上の塗布パターンが良質かつ鮮明なものとなる。請求項9、10の燃料電池電極の製造方法(複写方式)および請求項20の燃料電池電極の製造装置(複写方式)によれば、ドラム表面を所定パターンで帯電させ、帯電部位に静電気で電極材料粉末を吸着させるので、帯電パターンを選定することにより、任意のパターンの電極を形成することができる。請求項11～14の燃料電池電極の製造方法(スクリーン+スキージ方式)および請求項21～24の燃料電池電極の製造装置(スクリーン+スキージ方式)によれば、スクリーンドラム内の電極材料をスクリーンドラムのメッシュを通過させてドラム表面に所定パターンで塗布するので、所定パターンを選定する(ドラムの帯電パターンを選定したり、あるいはスクリーンドラムのメッシュのパターンを選定したりすることにより、任意のパターンの電極を形成することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の燃料電池電極の製造方法で製造された電極をもつ燃料電池の全体正面図である。

【図2】図1の燃料電池のモジュールの拡大断面図である。

【図3】本発明の実施例1の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図4】本発明の実施例2の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図5】本発明の実施例3の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図6】本発明の実施例4の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図7】本発明の実施例5の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図8】本発明の実施例6の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図9】本発明の実施例7の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図10】本発明の実施例8の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図11】(イ)～(ヘ)は、複数回塗布による電極の種々の三次元構成を示す図である。

【図12】本発明の実施例9の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図13】本発明の実施例10の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図14】本発明の実施例11の燃料電池電極の製造方

法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図15】本発明の実施例12の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図16】本発明の実施例13の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図17】本発明の実施例14の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図18】本発明の実施例15の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図19】本発明の実施例16の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図20】本発明の実施例17の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図21】本発明の実施例18の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図22】本発明の実施例19の燃料電池電極の製造方法を実施する燃料電池電極の製造装置の側面図である。

【図23】本発明の何れの実施例にも適用可能な電極材料粉末の一例の拡大図である。

【図24】本発明の何れの実施例にも適用可能な電極材料粉末のもう一例の拡大図である。

【符号の説明】

1 燃料電池電極製造装置

10 (固体高分子電解質型) 燃料電池

11 電解質膜

12 触媒層

12P 電極材料粉末(アノード用)

13 拡散層

14 電極(アノード、燃料極)

15 触媒層

15P 電極材料粉末(カソード用)

16 拡散層

17 電極(カソード、空気極)

18 セパレータ

19 セル

20 ターミナル

21 インシュレータ

22 エンドプレート

23 スタック

24 テンションプレート

25 ボルト

30 感光体ドラム

30A 対向ドラム

30B 対向ローラー

31 帯電ローラー

32 投光装置(レーザ光投光手段)

33 電極材料収容装置

34 電極材料粉末供給ローラー

35 定着ローラー

36 不活性ガス雰囲気

37 バインダー塗布ユニット

38 バインダー

39 バインダー塗布ローラー

39 バインダースプレーノズル

40 乾燥部

41 スクリーンドラム

42 スキージ

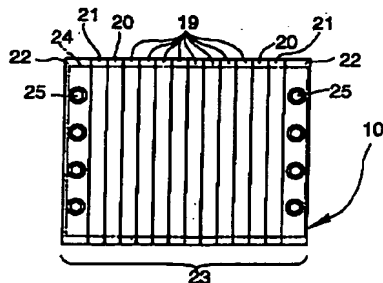
43 裏当てフィルム

44 裏当てフィルムのはがしまたは添設用のローラー

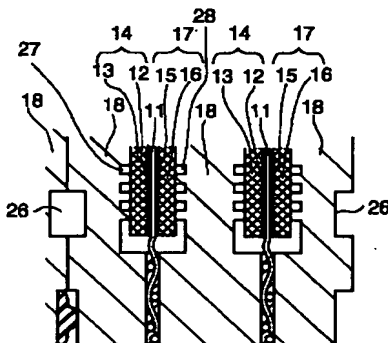
45 Pt担持のカーボン粉末

46 電解質粉末

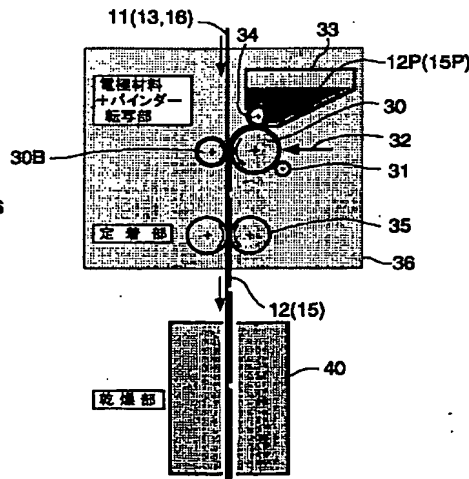
【図1】



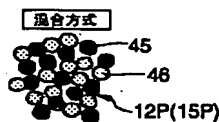
【図2】



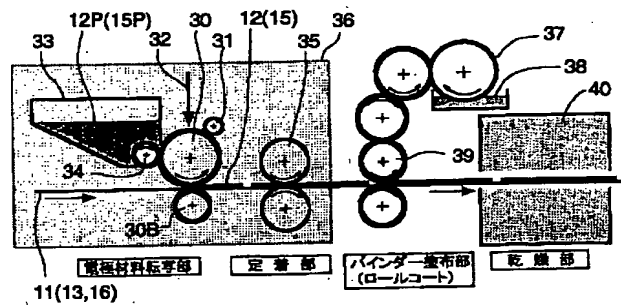
【図7】



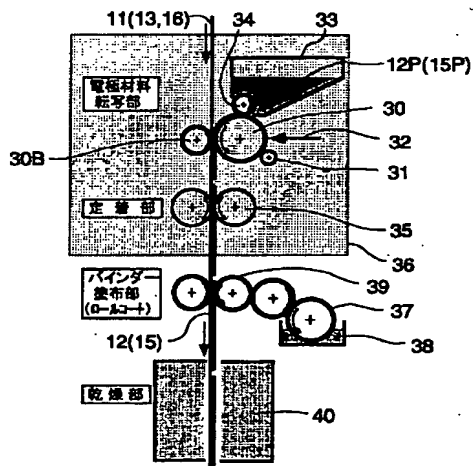
【図23】



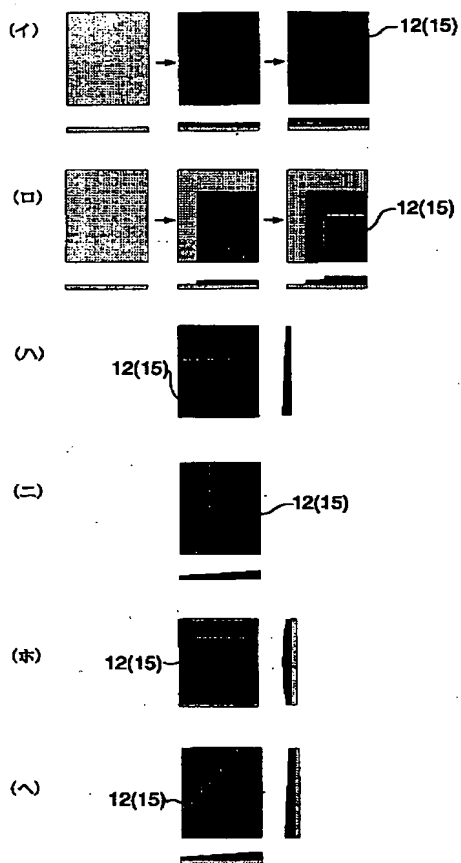
【図 4】



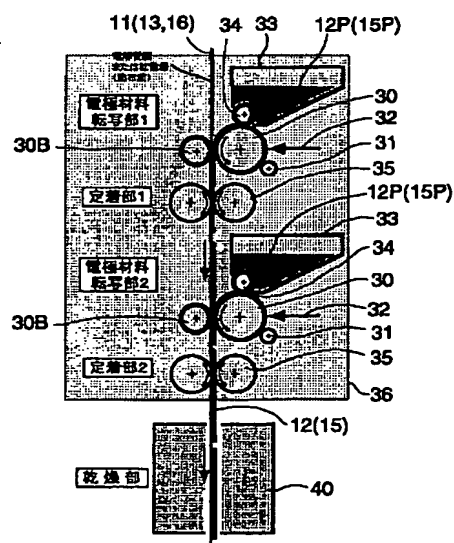
【图 8】



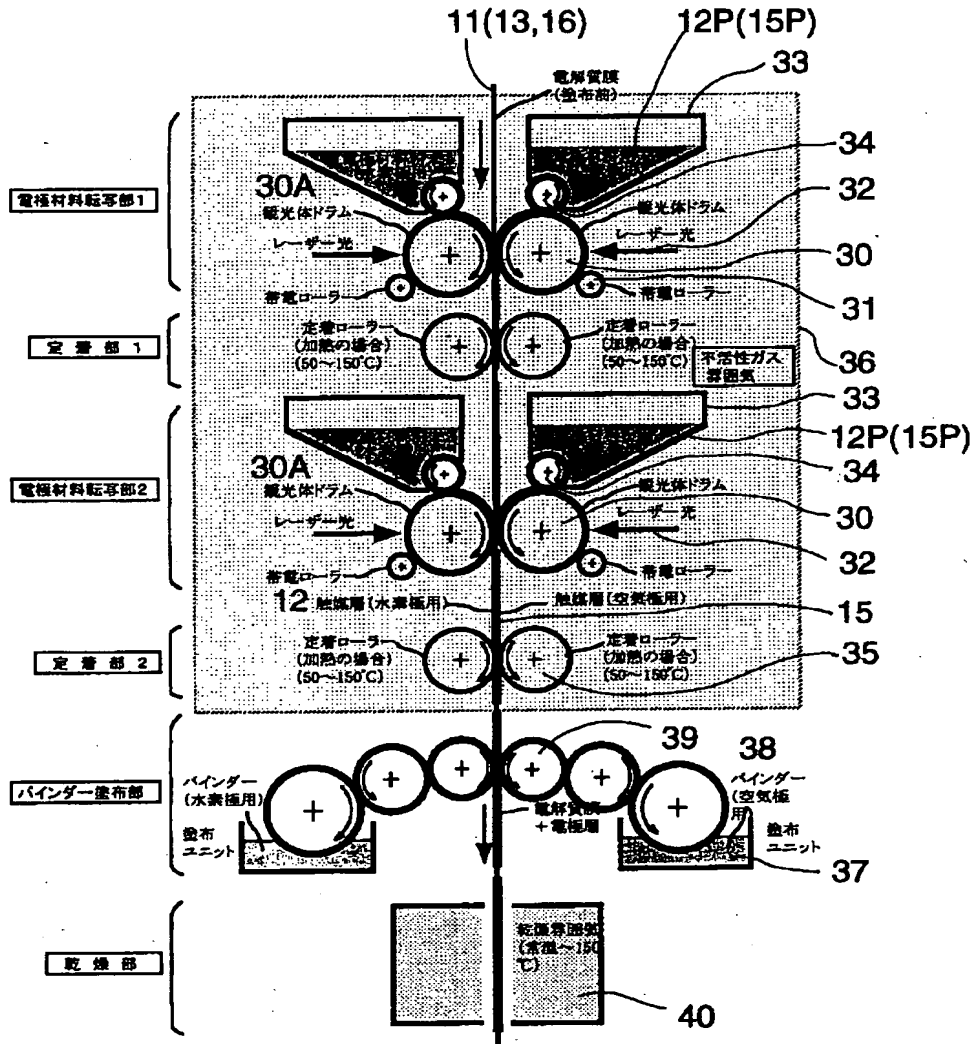
【图 1-1】



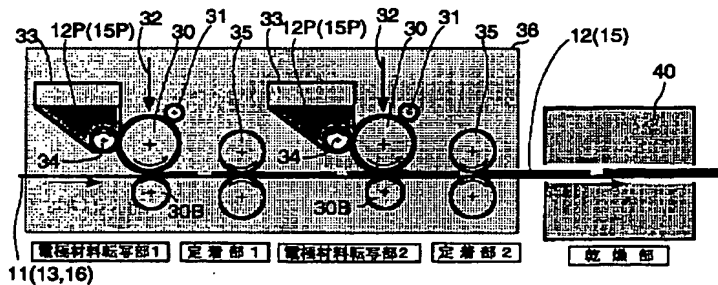
【圖 15】



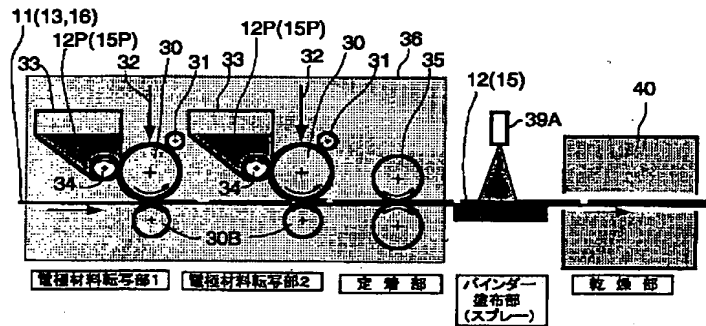
【図10】



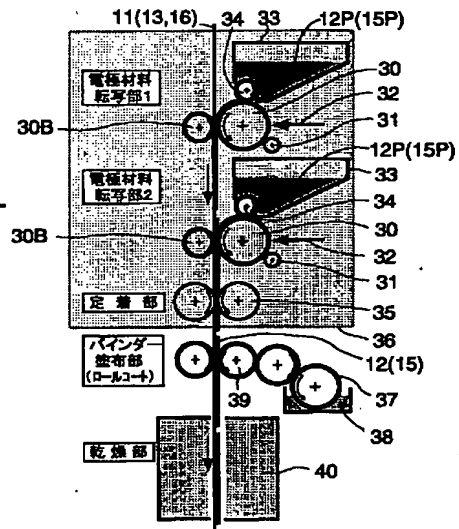
【図13】



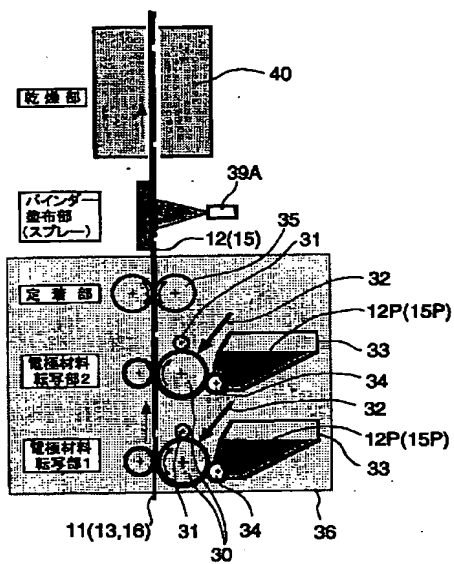
【図14】



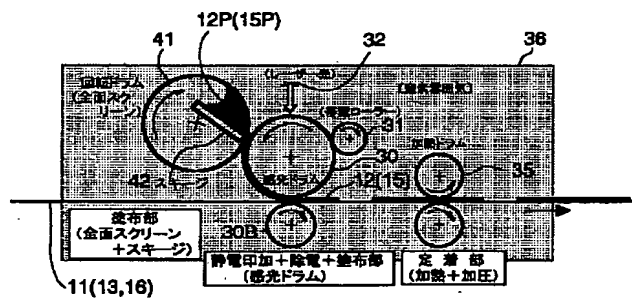
【図16】



【図17】

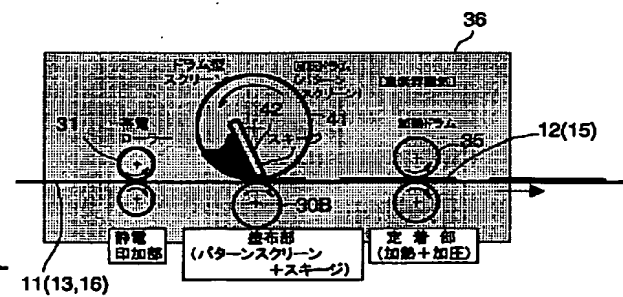
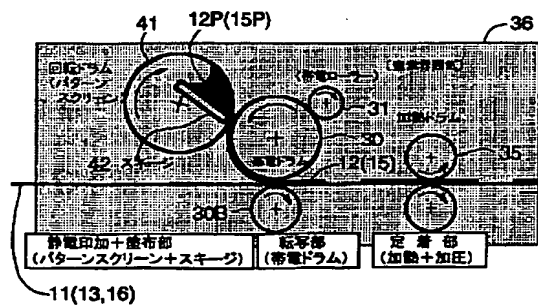


【図18】



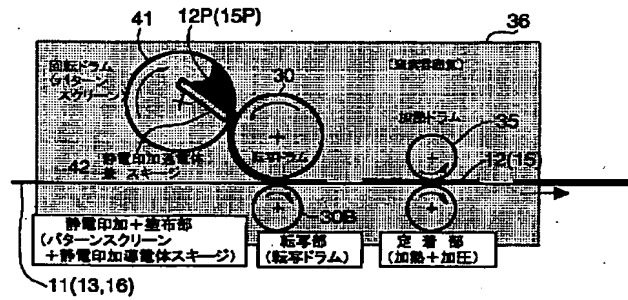
【図21】

【図19】

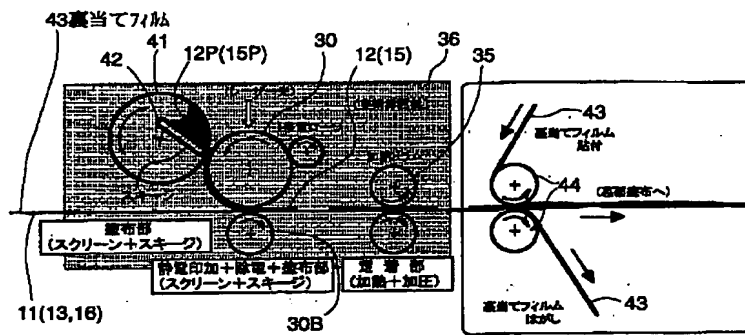




【図20】



【図22】



フロントページの続き

Fターム(参考) 5H018 AA06 AS01 BB06 BB08 BB12
DD03 DD08 DD10 EE05 HH09
5H026 AA06 BB03 BB04 BB08 CX05
EE05 HH03 HH09